

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-100456

(43)Date of publication of application : 07.04.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 10-267951

(71)Applicant : AISIN SEIKI CO LTD

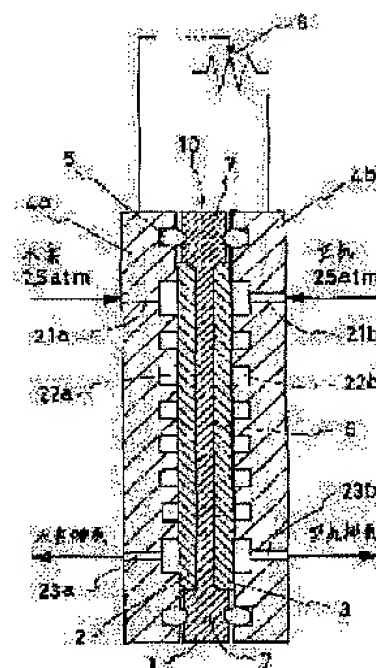
(22)Date of filing : 22.09.1998

(72)Inventor : YAMADA CHIAKI

**(54) MANUFACTURE OF JOINT OF SOLID POLYMER ELECTROLYTE FILM AND SOLID POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL****(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To improve the battery performance and prevent the breakdown of a solid polymer electrolyte film.

**SOLUTION:** In this manufacturing method of a joint 10 of a solid polymer electrolyte film 1 and electrodes, the solid polymer electrolyte film 1 is pinched by an anode electrode 2 and a cathode electrode 3, and they are jointed under pressure so that the film thickness of the electrode faying portion of the power generation region 6 of the solid polymer electrolyte film 1 is made thinner than the film thickness of the periphery section (seal section 7) of the power generation region 6.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-100456

(P2000-100456A)

(43) 公開日 平成12年4月7日 (2000.4.7)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターコード* (参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M	P 5 H 0 2 6
	8/10	8/10	E

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平10-267951

(22) 出願日 平成10年9月22日 (1998.9.22)

(71) 出願人 000000011

アイシン精機株式会社

愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地

(72) 発明者 山田 千秋

愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地 アイシン精機株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB02 CC03 CX04 EE18

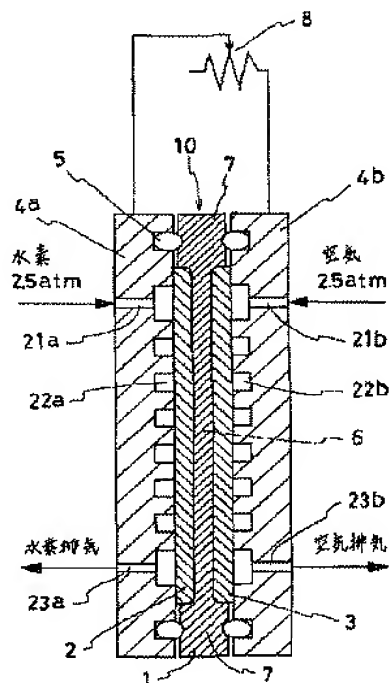
EE19 HH03 HH05 HH09

(54) 【発明の名称】 固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法及び固体高分子電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 電池性能が高く固体高分子電解質膜の破損を防止できる固体高分子電解質膜と電極の接合体及び固体高分子電解質型燃料電池を低コストな製造方法で提供する。

【解決手段】 固体高分子電解質膜1をアノード電極2とカソード電極3で挟持して、前記固体高分子電解質膜1の発電領域6である電極接合部分の膜厚を、該発電領域6の周辺部（シール部7）の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合したことを特徴とする固体高分子電解質膜と電極の接合体10の製造方法及び固体高分子電解質型燃料電池。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質膜を電極で挟持して、該固体高分子電解質膜の発電領域である電極接合部分の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合したことを特徴とする固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法。

【請求項 2】 前記固体高分子電解質膜がパーフルオロカーボンスルホン酸系樹脂であることを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法。

【請求項 3】 前記固体高分子電解質膜が炭化フッ素系ビニルモノマーと炭化水素系ビニルモノマーの共重合体のスルホン酸系樹脂であることを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法。

【請求項 4】 固体高分子電解質膜を電極で挟持して、該固体高分子電解質膜の発電領域である電極接合部分の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合した固体高分子電解質膜と電極の接合体をセパレータで挟持したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は固体高分子電解質膜と電極の接合体及びその製造方法及び固体高分子電解質型燃料電池に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、固体高分子電解質型燃料電池は低温で作動し出力密度が高く小型軽量電源としての研究と自動車、住生活、レジャー、その他への応用が展開されつつあり、その性能レベルは実用域に達しているが、一般的に電池の構成単位は数十枚から数百枚の固体高分子電解質膜の積層体からなり 1 枚の膜面内での均一な発電と共に前記固体高分子電解質膜が 1 枚でも膜破れがないような高い強度的信頼性が求められている。

【0003】 前記固体高分子電解質膜は、前記固体高分子電解質型燃料電池の電解質であると同時にアノード電極側の燃料ガスとカソード電極側の酸化剤ガスを分離するガスシールの役割を担っている。

【0004】 図 2 は一般的な固体高分子電解質型燃料電池の単セルの概略断面図である。前記固体高分子電解質型燃料電池の単セルは固体高分子電解質膜 11 をアノード電極 12 とカソード電極 13 でホットプレス等で接合して挟持した固体高分子電解質膜と電極の接合体 20 を燃料ガス又は酸化剤ガスの通流溝を有し前記固体高分子電解質膜と電極の接合体 20 で発電した電気を外部に取り出す機能を有するセパレータ 14a、14b で挟んだ構造をしている。

【0005】 前記固体高分子電解質膜 11 の電極 12、13 との接合部である発電領域 16 の周辺部 17 を利用してシールリング 15 で前記燃料ガスと前記酸化剤ガス

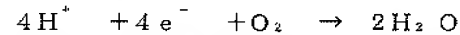
をシールしている。前記固体高分子電解質膜 11 は一定の膜厚である。

【0006】 前記アノード電極 12 では前記燃料ガス中の水素が触媒に接触することにより下記の反応が生ずる。



$\text{H}^+$  は、前記固体高分子電解質膜 11 中を移動し前記カソード電極 13 の触媒に達し前記酸化剤ガス中の酸素と反応して水となる。

## 【0008】



固体高分子電解質型燃料電池は上記の反応により起電力が生ずる。

【0009】 電気を外部に取り出した時、前記固体高分子電解質膜 11 は内部抵抗として働き、該内部抵抗が低い方が電池性能が良いので、性能面からは前記固体高分子電解質膜 11 の発電領域 16 の膜厚は薄い方が望ましい。

【0010】 一方、前記固体高分子電解質膜 11 の周辺部 17 は、ガスによる圧縮応力及びシールしているガスの圧力が変動し繰り返し曲げ応力が働くので、膜厚が薄いと破損するという問題が生じる。前記固体高分子電解質膜 11 の周辺部 17 が破損すると前記燃料ガスと前記酸化剤ガスが直接接触し燃料電池で使用される量が減少するため発電効率が低下し固体高分子電解質型燃料電池の出力低下となる。

【0011】 従来技術として、特開平 8-185881 号公報に固体高分子電解質膜をスピンコーティング装置のステージにのせて回転させ、回転中心上部より固体高分子電解質膜の溶液を滴下し、前記固体高分子電解質膜の溶液の溶媒が蒸発するまで回転を続けて、遠心力の作用を利用して膜厚の変化を作り出し、前記固体高分子電解質膜の中央部の膜厚を周辺部より薄くした固体高分子電解質膜の製造方法が開示されている。

【0012】 具体的には前記。

## 【0013】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、従来技術は、スピンコート の原理から中央部を薄く周辺部を厚くしようすると、膜厚は均一にならず固体高分子電解質膜の中心部は薄く円周方向に向かって厚く徐変する。

【0014】 こうして作製された固体高分子電解質膜を用いて固体高分子電解質型燃料電池を製造し発電させると、より薄い部分に電流集中が起こるので、局所的な発熱があるなど電池としての不具合が発生する。

【0015】 また、スピンコートによる製造方法は、固体高分子電解質膜の溶液中の溶媒が蒸発して固体高分子電解質膜として固化するまでスピンコーティング装置の回転を続けなければならないため生産性が悪く高コストになるし、品質的にもばらつきが大きく問題がある。

【0016】 本発明は上記課題を解決したもので、固体

高分子電解質膜の破損が防止でき、且つ電池性能が向上できる低コストの固体高分子電解質膜と電極の接合体及びその製造方法及び固体高分子電解質型燃料電池を提供する。

【0017】

【課題を解決するための手段】上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項1において講じた技術的手段（以下、第1の技術的手段と称する。）は、固体高分子電解質膜を電極で挟持して、該固体高分子電解質膜の発電領域である電極接合部分の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合したことを特徴とする固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法である。

【0018】上記第1の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0019】即ち、ガスシール部分である前記発電領域の周辺部の強度が向上でき、且つ固体高分子電解質型燃料電池の内部抵抗を低くすることができるので、電池性能が高く、且つ固体高分子電解質膜の破損が防止できる固体高分子電解質膜と電極の接合体を簡単な方法で低コストに製造することができる。

【0020】上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項2において講じた技術的手段（以下、第2の技術的手段と称する。）は、前記固体高分子電解質膜がパーフルオロカーボンスルホン酸系樹脂であることを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法である。

【0021】上記第2の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0022】即ち、上記材料を使用することにより、高性能な固体高分子電解質型燃料電池ができるといった効果を有する。

【0023】上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項3において講じた技術的手段（以下、第3の技術的手段と称する。）は、前記固体高分子電解質膜が炭化フッ素系ビニルモノマーと炭化水素系ビニルモノマーの共重合体のスルホン酸系樹脂であることを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法である。

【0024】上記第3の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0025】即ち、上記材料を使用することにより、高性能で低コストの固体高分子電解質型燃料電池ができるといった効果を有する。

【0026】上記技術的課題を解決するために、本発明の請求項4において講じた技術的手段（以下、第4の技術的手段と称する。）は、固体高分子電解質膜を電極で挟持して、該固体高分子電解質膜の発電領域である電極接合部分の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合した固体高分子電解質膜と

電極の接合体をセパレータで挟持したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池である。

【0027】上記第4の技術的手段による効果は、以下のようである。

【0028】即ち、固体高分子電解質膜の破損が防止でき、且つ発電領域での内部抵抗を下げることで、電池性能が高く且つ信頼性の高い固体高分子電解質型燃料電池が低コスト化できる。

【0029】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施例について、図面に基づいて説明する。

【0030】性能面からは固体高分子電解質膜の発電領域は低抵抗即ち膜厚が薄い状態が望ましく、一方、前記固体高分子電解質膜の支持固定を兼ねた周辺部は圧縮、繰返し曲げに対する耐久性から膜厚を厚くすることが望ましい。

【0031】本発明は、前記固体高分子電解質膜の発電領域の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くした固体高分子電解質膜と電極の接合体を工業的に製造するものである。

【0032】本発明の固体高分子電解質膜と電極の接合体は、前記固体高分子電解質膜を前記電極で上下から挟持して、室温又は加温状態でプレス等で加圧することにより製造する。この時、前記固体高分子電解質膜は乾燥、湿潤または完全に吸水した状態のいずれでもよい。

【0033】前記電極で挟まれた部分の固体高分子電解質膜は温度、圧力に応じて薄くなり、その周辺部に当たるプレス圧のかからないガスシール部分の固体高分子電解質膜は押しつぶされることなく元の膜厚が確保される。

【0034】なお、本発明に使用できる固体高分子電解質膜は、すでに食塩電解工業分野等で上市されているナフィオン（デュボン社製）を中心とするパーフルオロカーボンスルホン酸系樹脂、又は炭化フッ素系ビニルモノマーと炭化水素系ビニルモノマーの共重合体のスルホン酸系樹脂、炭化水素スルホン酸系樹脂を材料とするもの等固体高分子電解質型燃料電池に使用できる固体高分子電解質膜ならすべて適用できる。

【0035】また電極の形状の詳細については、膜厚が変化する部位に接する前記電極の最外周角部の直線部とコーナ部は膜への応力集中をさけるに足りる面取りをすることは固体高分子電解質膜の強度確保にとって有利であり、より信頼性が高くなることは言うまでもない。

【0036】（実施例）本実施例で使用した固体高分子電解質膜は、炭化フッ素系ビニルモノマーと炭化水素系ビニルモノマーの共重合体を主鎖とし、スルホン酸基を有する炭化水素系側鎖からなる陽イオン交換膜である。

【0037】具体的には、エチレンテトラフルオロエチレンにγ線を照射し、生成するラジカルを起点にスチレ

10

20

30

40

50

ンをグラフトし、引続きスルホン化反応によりスルホン酸基を導入し前記固体高分子電解質膜を作製した。

【0038】前記固体高分子電解質膜の膜厚は100℃絶乾状態で75μm、室温飽和含水状態で90μmであった。

【0039】一辺200mm正方形の前記固体高分子電解質膜を室温で飽和含水させた後、厚さ180μmのカーボンペーパーの一方の面に白金・カーボンペーストを塗布し乾燥させた厚みが210μm、一辺185mm正方形の電極2枚で前記固体高分子電解質膜の外周部が7.5mmの幅で残るように前記固体高分子電解質膜を挟持し、ホットプレス条件160℃、80Kg/cm<sup>2</sup>で全体の厚みが460μmになる迄圧縮し、この状態を1分間保持した。

【0040】出来上がった固体高分子電解質膜と電極の接合体の前記固体高分子電解質膜は、ほぼ絶乾状態に仕上がり断面の観察を実施した。前記電極が存在する発電領域の全体の厚みは460μm、前記固体高分子電解質膜の電極に挟まれた発電領域の膜厚は40μmとほぼ均一に圧縮されていた。前記固体高分子電解質膜の発電領域の周辺部の膜厚は75μmで、初期の膜厚のままだった。

【0041】図1は本発明の実施例の固体高分子電解質膜と電極の接合体の評価に使用した固体高分子電解質型燃料電池の単セルの概略断面図である。

【0042】10は、上記で作製した固体高分子電解質膜と電極の接合体である。1が固体高分子電解質膜であり、発電領域6の膜厚は均一で薄く、該発電領域6の周辺部7の膜厚は厚くなっている。2はアノード電極、3はカソード電極である。

【0043】前記固体高分子電解質型燃料電池の単セルは前記固体高分子電解質膜と電極の接合体10を燃料ガス又は酸化剤ガスの通流溝を有し前記固体高分子電解質膜と電極の接合体10で発電した電気を外部に取り出す機能を有するセパレータ4a、4bで挟んだ構造をしている。

【0044】前記発電領域6の周辺部7を利用してシーリング5で前記燃料ガス及び前記酸化剤ガスをシールしている。

【0045】セパレータ4aには水素供給口21a、水素通流溝22a、水素排出口23aが設けられ、セパレータ4bには空気供給口21b、空気通流溝22b、空気排出口23bが設けられている。

【0046】前記水素供給口21aより前記水素通流溝22aを介して前記アノード電極2に2.5atmの燃料ガスである水素を、前記空気供給口21bより前記空気通流溝22bを介して前記カソード電極3に2.5atmの酸化剤ガスである空気を供給した。

【0047】前記空気及び前記水素にはバブリング法により水蒸気を供給して加湿を行った。前記セパレータ4

aと前記セパレータ4bの電気端子から発電した電気を取り出し、外部の可変抵抗8で抵抗を変えて電流密度とセル電圧を測定して評価した。

【0048】セル温度80℃、水素・空気の利用率80%・40%で性能評価を実施した結果、電流密度1A/cm<sup>2</sup>で630mVの出力を得た。

【0049】一方、圧縮されていない固体高分子電解質膜の周辺部7の引張強度をJISK-6251（6号形ダンベル）の方法で測定したところ3.5Kg/cmで、接合体を作製する前の前記固体高分子電解質膜の引張強度と比較した引張強度である強度保持率はほぼ100%であることが分かり、ガスシール部の強度として信頼性の高い状態であることが確認できた。

【0050】（比較例）実施例と同じ方法で膜厚だけが異なる固体高分子電解質膜を作製した。該固体高分子電解質膜の膜厚は100℃絶乾状態で40μmであった。乾燥状態の前記固体高分子電解質膜を使用し、該固体高分子電解質膜の表面に少量のイオン交換溶液（和光純薬製、ナフィオン5wt%溶液）を塗布した後、実施例と同様の電極で挟んで実施例と同じプレス条件で固体高分子電解質膜と電極の接合体を作製した。

【0051】前記電極が存在する発電領域の全体の厚みは460μm、前記固体高分子電解質膜の電極に挟まれた発電領域の膜厚、前記固体高分子電解質膜の発電領域の周辺部の膜厚は同じ40μmの厚さに仕上がった。

【0052】実施例と同じ方法で電池性能を評価したところ、実施例とほぼ同じレベルの電流密度1A/cm<sup>2</sup>で600mVの出力を得た。

【0053】前記固体高分子電解質膜の発電領域の周辺部の引張強度を実施例と同様にJISK-6251（6号形ダンベル）の方法で測定したところ2.0Kg/cmで、実施例の引張強度の57%であった。前記引張強度は、ほぼ膜厚に比例しているが、固体高分子電解質膜の破損を防止するためには前記引張強度が大きいことが重要である。

【0054】以上のように、実施例は固体高分子電解質膜の電極に挟まれた発電領域の膜厚が均一且つ薄く、前記固体高分子電解質膜の発電領域以外の電極の周辺部の引張強度が大きくなっているため、電池性能が高いままガスシール部の強度を大きくすることができ、前記固体高分子電解質膜の破損を防止できることが確認できた。

【0055】実施例の固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方法は、新たな工程を設ける必要がないので低コストで製造することができる。

【0056】

【発明の効果】以上のように、本発明は、固体高分子電解質膜を電極で挟持して、該固体高分子電解質膜の発電領域である電極接合部分の膜厚を、該発電領域の周辺部の膜厚より薄くするように圧力をかけて接合したことを特徴とする固体高分子電解質膜と電極の接合体の製造方

法及び固体高分子電解質型燃料電池であるので、電池性能が高く、前記固体高分子電解質膜の破損を防止できる固体高分子電解質膜と電極の接合体及び固体高分子電解質型燃料電池が低コストでできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例の固体高分子電解質膜と電極の接合体の評価に使用した固体高分子電解質型燃料電池の単セルの概略断面図

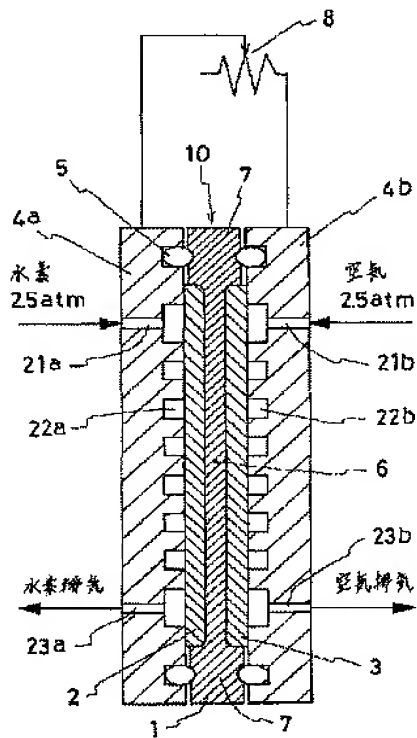
【図2】一般的な固体高分子電解質型燃料電池の単セル\*

\*の概略断面図

【符号の説明】

- 1…固体高分子電解質膜
- 2…電極（アノード）
- 3…電極（カソード）
- 4 a、4 b…セパレータ
- 6…発電領域
- 7…電極の周辺部
- 10…固体高分子電解質膜と電極の接合体

【図1】



【図2】

